

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-231926

(43)Date of publication of application : 19.08.1994

(51)Int.Cl.

H01F 1/08  
C22C 38/00  
H01F 1/053

(21)Application number : 05-015431

(71)Applicant : HITACHI METALS LTD

(22)Date of filing : 02.02.1993

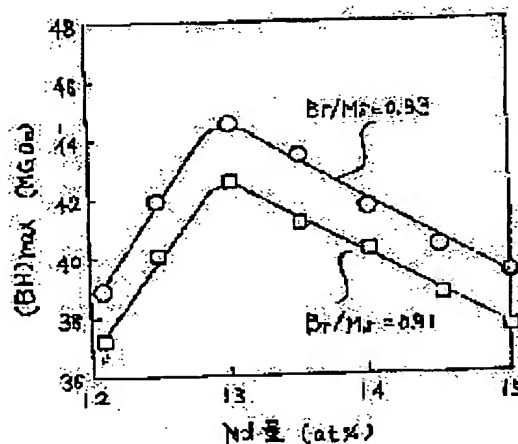
(72)Inventor : ENDO MINORU

## (54) RARE EARTH PERMANENT MAGNET

(57)Abstract:

PURPOSE: To clarify the combination of orientation required for raising the performance of an Nd-Fe-B magnet and main phase volume percentage, and clarify the optimum quantity of a phase rich in Nd and a phase rich in B, and clarify the structure form required to obtain target property.

CONSTITUTION: This magnet has the structure of  $(Nd_{1-x-yz}Ce_xPr_yDy_z)aFe_bCo_cB_dAD_eMfAl_g$  (here,  $0.01 \leq X \leq 0.1$ ,  $0.05 \leq Y \leq 0.5$ ,  $0.001 \leq Z \leq 0.25$ , AD is at least one kind out of Cu, Zn, and Ga, and M is at least one kind out of V, Mo, Nb, and W, and  $5 \leq a \leq 18$ at%,  $65 \leq b \leq 85$ at%,  $0 \leq c \leq 20$ at%,  $4 \leq d \leq 15$ at%,  $0 \leq e \leq 7$ at%, and  $0 \leq g \leq 5$ at%). This is a rare earth permanent magnet consisting of a sintered substance where the orientation degree (Br/Ms) is 0.90-0.97, the main phase volume percentage is 90-97%, and the volume percentage of other nonmagnetic phase is 3-10%.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 21.10.1999

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3296507

[Date of registration] 12.04.2002

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right] 17.09.2003

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

BEST AVAILABLE COPY

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-231926

(43)公開日 平成6年(1994)8月19日

(51)Int.Cl.<sup>5</sup>

識別記号

庁内整理番号

FI

技術表示箇所

H 0 1 F 1/08

B

C 2 2 C 38/00

3 0 3 D

H 0 1 F 1/053

H 0 1 F 1/ 04

H

審査請求 未請求 請求項の数4 OL (全4頁)

(21)出願番号

特願平5-15431

(22)出願日

平成5年(1993)2月2日

(71)出願人 000005083

日立金属株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目1番2号

(72)発明者 遠藤 実

埼玉県熊谷市三ヶ尻5200番地日立金属株式  
会社磁性材料研究所内

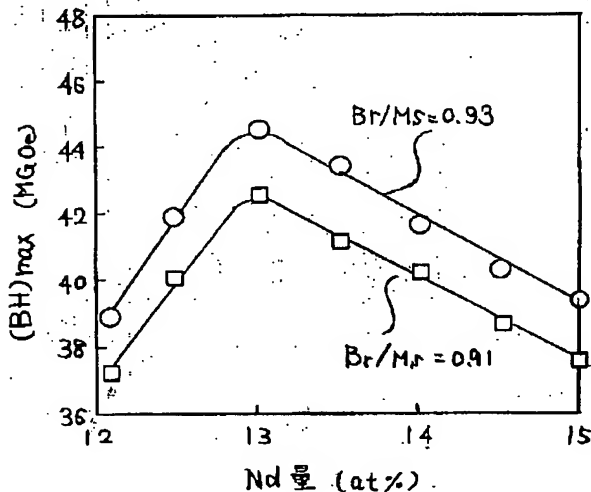
(74)代理人 弁理士 大場 充

(54)【発明の名称】 希土類永久磁石

(57)【要約】

【目的】 Nd-Fe-B系磁石を高性能化するのに必要な配向度と主相体積率の組み合わせを明らかにし、且つNdリッチ相とBリッチ相の最適量を明らかにし、目標特性を得るのに必要な組織形態を明らかにする。

【構成】  $(Nd_{1-x-y-z}Ce_xPr_yDy_z)_aFe_bCo_cB_dAD_eMfAl_g$  (ここで、 $0.001 \leq x \leq 0.1$ 、 $0.05 \leq y \leq 0.5$ 、 $0.001 \leq z \leq 0.25$ 、ADはCu, Zn, Gaのうち少なくとも1種で、MはV, Mo, Nb, Wのうち少なくとも1種で、 $5 \leq a \leq 18 \text{ at\%}$ 、 $65 \leq b \leq 85 \text{ at\%}$ 、 $0 \leq c \leq 20 \text{ at\%}$ 、 $4 \leq d \leq 15 \text{ at\%}$ 、 $0 \leq e \leq 7 \text{ at\%}$ 、 $0 \leq f \leq 7 \text{ at\%}$ 、 $0 \leq g \leq 5 \text{ at\%}$ )の組成を有し、配向度(Br/Ms)が0.90~0.97で、主相体積率が90~97%、その他非磁性相の体積率が3~10%で、ある焼結体からなる希土類永久磁石。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】  $R_2T_{14}B$ 化合物（Rは希土類金属元素、Tは遷移金属元素）を主体とする主相と非磁性相とから構成されるR-T-B系希土類永久磁石であり、配向度（ $B_r/M_s$ ）が0.90～0.97で、主相体積率が89～97%、その他非磁性相の体積率が3～10%である焼結体からなることを特徴とする希土類永久磁石。

【請求項2】 主相体積率が89～95%、その他非磁性相の体積率が5～10%で、 $(BH)_{max}$ が38～46MGOeである請求項1に記載の希土類永久磁石。

【請求項3】 主相体積率が92～97%、その他非磁性相の体積率が3～7%で、 $(BH)_{max}$ が42～53MGOeである請求項1に記載の希土類永久磁石。

【請求項4】 Ndリッチ相の体積率が2～8%で、Bリッチ相の体積率が0.05～8%である請求項1～3のいずれかに記載の希土類永久磁石。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、VCM（ボイスコイルモータ）、回転機器等に使用される高性能希土類永久磁石に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】Nd-Fe-B系磁石（特許公告 昭63-65742）は飽和磁化が大きく、高エネルギー積が得られることから幅広い用途に使用されるようになった。これまで問題とされていた耐熱性および耐食性といった問題はある程度解決され、実用上は問題ある程度解決された。最大エネルギー積も30～40MGOeのものが生産されるようになった。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】近時永久磁石を用いた装置のより一層の小型化が要求されており、それにとともにより高いエネルギー積を有する永久磁石の登場が望まれている。そこで本発明は、エネルギー積の高い希土類磁石の提供を課題とする。

## 【0004】

【課題を解決するための手段】Nd-Fe-B系磁石を高性能化するには結晶粒の配向度を向上させ、且つ酸素量を低減することにより全希土類元素量を低減し、主相体積率を向上させることが不可欠となる。ここで配向度とは各々の結晶粒において磁化容易軸がどの程度揃っているかを表す数値で、通常残留磁束密度 $B_r$ と飽和磁化 $M_s$ の比（ $B_r/M_s$ ）で表される。配向度を向上させるには、成形過程で磁界中配向した場合微粉碎粉が磁氣的に凝集するので、この磁気凝集を緩和し、配向を乱さないように成形する必要がある。また、主相体積率を向上させるにはNdリッチ相、Bリッチ相、酸化物相、Nb析出物、ポア等の非磁性相を最小限に抑えることが必要となる。しかし、主相体積率を多くしても、Ndリッ

チ相がないと良好な磁気特性が得られないし、Bリッチ相がなくなるとFeが生成し、角型性を悪くする。このため、Ndリッチ相とBリッチ相には良好な磁気特性を出すための範囲が存在する。

【0005】本発明は以上の知見にもとづきなされたものであり、 $R_2T_{14}B$ 化合物（Rは希土類金属元素、Tは遷移金属元素）を主体とする主相と非磁性相とから構成されるR-T-B系希土類永久磁石であり、配向度（ $B_r/M_s$ ）が0.90～0.97で、主相体積率が89～97%、その他非磁性相の体積率が3～10%である焼結体からなることを特徴とする希土類永久磁石である。

【0006】以下本発明をさらに詳述する。本発明希土類永久磁石は、配向度（ $B_r/M_s$ ）が0.90～0.97で、主相体積率が89～97%、その他非磁性相の体積率が3～10%であるが、配向度（ $B_r/M_s$ ）が0.90～0.94で、主相体積率が89～95%、その他非磁性相の体積率が5～10%の場合に $(BH)_{max}=40\sim46$ MGOeの特性が、また配向度（ $B_r/M_s$ ）が0.92～0.97で、主相体積率が92～97%で、その他非磁性相の体積率が3～7%の場合に $(BH)_{max}=42\sim53$ MGOeの特性が得られる。

【0007】主相以外の非磁性相は、Ndリッチ相の体積率が2～8%で、Bリッチ相の体積率が0.1～8%であることが好ましい。Ndリッチ相は体積率で2%未満では液相焼結ができずに、良好な特性が得られないので体積率で2%以上とする。望ましくは2.3%以上である。Bリッチ相が存在しない場合にはFeが生成し角型性が悪くなり、体積率で0.1%以上ならFeは生成せず優れた磁気特性が得られる。よって体積率で0.5%以上とする。しかし、Ndリッチ相、Bリッチ相はそれぞれ8%を超えて存在すると磁気特性を低下させるので好ましくない。

【0008】本発明希土類永久磁石の組成としては下記のもの望ましい。

$(Nd_{1-x-y-z}Ce_xPr_yDy_z)_aFe_bCo_cB_dAl_eMfAg$

（ここで、 $0.001 \leq X \leq 0.1$ 、 $0.05 \leq Y \leq 0.5$ 、 $0.001 \leq Z \leq 0.25$ 、ADはCu、Zn、Gaのうち少なくとも1種で、MはV、Mo、Nb、Wのうち少なくとも1種で、 $5 \leq a \leq 18$ at%、 $65 \leq b \leq 85$ at%、 $0 \leq c \leq 20$ at%、

$4 \leq d \leq 15$ at%、 $0 \leq e \leq 7$ at%、 $0 \leq f \leq 7$ at%、 $0 \leq g \leq 5$ at%）

希土類元素Rは5at%以上、18at%以下で、好ましくは10at%以上、16at%以下の範囲で含有される。Ceの過剰な添加は好ましくなく、 $0.001 \leq X \leq 0.1$ が望ましい。Prは $0.05 \leq Y \leq 0.5$ の範囲で使用すれば保磁力・耐熱性の向上に効果がある

が、これ以上の添加は飽和磁化を減少させ、耐食性も低

3

下させる。Dyを含む場合に大きい保磁力が得られ、Nd+Ce+PrとDyの比率としては99.95:0.05から75:25の範囲が飽和磁化を大きく低下せず、高保磁力が得られるため望ましい。

【0009】Feは $65 \leq b \leq 85$ at%の範囲に含まれる。65at%未満では飽和磁化が低く、また85at%を越えると保磁力が著しく低下するからである。

【0010】Coは熱安定性向上に寄与する元素であり、20at%以下の範囲に含まれる。20at%を越えると飽和磁化と保磁力が低下するからである。なお、FeとCoの比率は、適度な角型性と保磁力を保持するため99.95:0.05から77:23の範囲にするのが望ましい。

【0011】Bの量は $4 \leq d \leq 15$ at%が好ましく、この範囲外では残留磁束密度と保磁力が小さくなる。

【0012】ADは保磁力を向上させるための元素であるが、7at%を越えると残留磁束密度を低下させるので7at%以下とする。 $0.01 \leq e \leq 4$ at%の範囲とするのが好ましい。

【0013】M元素は結晶粒成長抑制および熱安定性向上に効果のある元素であるが、過剰に含まれると飽和磁化を低下させるので添加する場合は7at%以下とするのが好ましい。

【0014】Alは保磁力向上に効果があり、Ferro-Bからおよび溶解時に混入してくる。しかし過剰に含まれるとキュリー温度を下げるので、添加する場合は5at%以下とする。

【0015】次に本発明磁石の製造方法について説明する。本発明磁石は、焼結法により作製することができる。溶解インゴットを作製しこのインゴットに水素吸蔵・脱水素処理を施した後、微粉碎し、その後に磁場中成形、焼結、熱処理することにより得られる。

【0016】

【実施例】

(実施例1) 金属Nd、金属Dy、Fe、Co、ferro-B、ferro-Nbを下記組成になるように秤量し、これを真空溶解して重量10kgのインゴットを作製した。 $Nd_xDy_{0.4}Fe_{88.1-x}Co_{4.5}B_6Nb_{0.5}Al_{0.5}$  ( $x=12.1 \sim 15.0$ ) このインゴットをハンマーで解砕した後、さらに粗粉碎機を用い不活性ガス雰囲気中での粗粉碎を行い $500 \mu m$ 以下の粒度の粗粉を得た。この粗粉を同じくジェットミルを用い不活性ガス雰囲気中で微粉碎をして微粉を得た。この微粉は平均

4

粒径 $4.0 \mu m$  (F. S. S. S.) であった。次に、この微粉を磁場中プレス成形し、 $20 \times 20 \times 15$ の成形体を作製した。この成形体を焼結し、さらに熱処理を施すことによって永久磁石を得た。図1にNd量による(BH) maxの変化を示すが、Nd量が12.7at%以下の場合Ndリッチ相の減少により良好な特性が得られない。また、図1から明かなように、配向度(Br/Ms)が0.91の場合には(BH) max = 45 MGOeを得られていないが、配向度が0.93の場合には(BH) max = 45 MGOeが得られるているのがわかる。図2にNd<sub>12.8</sub>Dy<sub>0.4</sub>Fe<sub>75.3</sub>Co<sub>4.5</sub>B<sub>6.0</sub>Nb<sub>0.5</sub>Al<sub>0.5</sub>の組成における酸素量とBリッチ相、Ndリッチ相、酸化物相、Nb析出物の体積率の変化を示す。酸素量の増加とともに酸化物相は増加するが、Ndリッチ相は減少する。Nb析出物およびBリッチ相は酸素量に拘らずほぼ一定である。なお酸素量が0.3wt%の時の主相体積率は94.28%であった。

【0017】(実施例2) 実施例1と同様にして組成Nd<sub>12.4</sub>Dy<sub>0.4</sub>Fe<sub>75.9</sub>Co<sub>4.5</sub>B<sub>5.9</sub>Nb<sub>0.4</sub>Al<sub>0.5</sub>で、酸素量0.1wt%、ポア0.5vol%の磁石を得た。この磁石の配向度による(BH) maxの変化を図3に示す。この組成において配向度を0.958以上とすれば(BH) max = 50 MGOeの特性が得られることがわかる。この時の主相体積率は95.96%、Bリッチ相は0.1%、Ndリッチ相は2.62%、酸化物相は0.65%、Nb析出物は0.17%であった。

【0018】

【発明の効果】 R-T-B系磁石において配向度と主相体積率、さらにNdリッチ相、Bリッチ相の最適化を図ることにより高性能磁石を得ることができた。

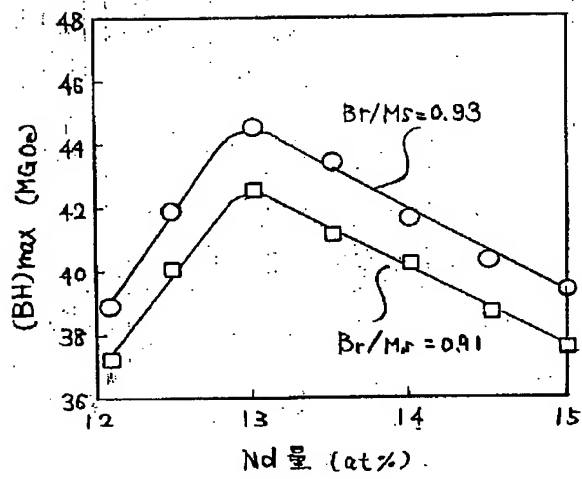
【図面の簡単な説明】

【図1】  $Nd_xDy_{0.4}Fe_{88.1-x}Co_{4.5}B_6Nb_{0.5}Al_{0.5}$  ( $x=12.1 \sim 15.0$ ) の磁石においてNd量による(BH) maxの変化を示すグラフである。

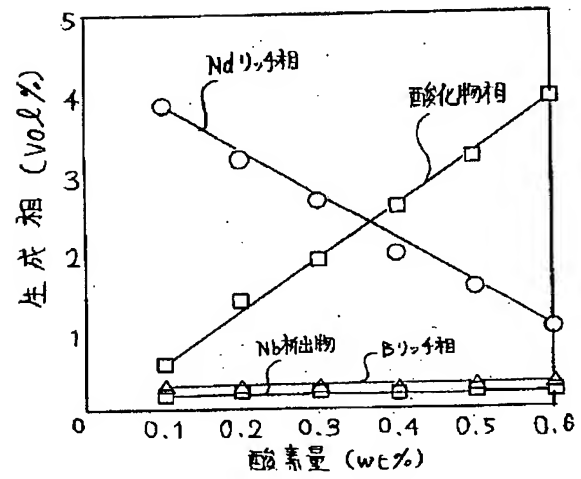
【図2】 Nd<sub>12.8</sub>Dy<sub>0.4</sub>Fe<sub>75.3</sub>Co<sub>4.5</sub>B<sub>6.0</sub>Nb<sub>0.5</sub>Al<sub>0.5</sub>の組成で酸素量を変化させた時のBリッチ相、Ndリッチ相、酸化物相、Nb析出物の体積率の関係を示すグラフである。

【図3】 Nd<sub>12.4</sub>Dy<sub>0.4</sub>Fe<sub>75.9</sub>Co<sub>4.5</sub>B<sub>5.9</sub>Nb<sub>0.4</sub>Al<sub>0.5</sub>で、酸素量0.1wt%、ポア0.5vol%の場合における、配向度による(BH) maxの変化を示すグラフである。

【図1】



【図2】



【図3】

